

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 60255941 A  
TITLE: MANUFACTURE OF RARE EARTH ELEMENT-TRANSITION METAL  
ELEMENT-SEMIMETAL  
ALLOY MAGNET

CCXR:  
419/29

FPAR:

PURPOSE: To manufacture a magnet material superior in magnetic characteristic by sintering a formed body of rare earth element - transition metal element - semimetal element alloy powders at a specified temp. in vacuum or inert gas atmosphere, then heat treating said body at a specified temp.

FPAR:

CONSTITUTION: The formed body of said powders is sintered at  $1,050 \sim 1,150^{\circ}\text{C}$  in vacuum or inert gas atmosphere. Thereafter, the sintered body is heat treated at  $550 \sim 750^{\circ}\text{C}$  temp., to obtain the rare earth element - transition metal element - semimetal alloy magnet material superior in magnetic characteristic such as max. energy product, etc. with good reproducibility. In said method,  $\leq 10^{\circ}\text{C}/\text{min}$  cooling rate after the sintering is preferable,  $5 \sim 60\text{min}$  holding time in heat treatment, and  $\geq 50^{\circ}\text{C}/\text{min}$  cooling rate thereafter are preferable. In said alloy, usings of Nd, Fe or a metal in which a part of Fe is substituted by Co, and B are preferable for rare earth element, transition metal and semimetal, respectively.

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭60-255941

⑬ Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 昭和60年(1985)12月17日

C 22 C 1/04  
C 22 F 1/10

8218-4K  
8019-4K

審査請求 未請求 発明の数 1 (全5頁)

⑮ 発明の名称 希土類元素-遷移金属元素-亜金属合金磁石の製造方法

⑯ 特 願 昭59-108687

⑰ 出 願 昭59(1984)5月30日

⑱ 発 明 者 大 槻 悦 夫 仙台市郡山6丁目7番1号 東北金属工業株式会社内  
⑲ 発 明 者 佐 藤 忠 邦 仙台市郡山6丁目7番1号 東北金属工業株式会社内  
⑳ 出 願 人 東北金属工業株式会社 仙台市郡山6丁目7番1号  
㉑ 代 理 人 弁理士 芦 田 坦 外2名

明 細 書

コバルで置換したもの、亜金属がホウ素であることを特徴とする製造方法。

1. 発明の名称

希土類元素-遷移金属元素-亜金属合金磁石  
の製造方法

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は、ネオジウム-鉄を基本系とし、種々の希土類元素、遷移金属元素および亜金属元素を含む希土類永久磁石材料の製造方法に関し、とくに、高エネルギー積の磁性体を製造する方法に関するものである。

〔従来技術〕

希土類元素-遷移金属間化合物は飽和磁化が高いため、高エネルギー積磁石材料としての可能性を有する。その中で、Sm-Co系合金は高飽和磁化に加えて高磁気異方性を持つため、現在、高性能磁石材料の中心をなし、最大エネルギー積 $(BH)_{max}$  ~ 32 MGOeに達するまでに至った。

〔技術的課題〕

しかし、Sm原料の供給が逼迫し、さらにCoは価格変動が大きいことから、SmやCoの使用量の

2. 特許請求の範囲

1. 希土類元素-遷移金属元素-亜金属合金粉末の成形体を真空中あるいは不活性ガス雰囲気中にて1050~1150℃の温度で焼結し、その後550~750℃の温度で熱処理することを特徴とする希土類元素-遷移金属元素-亜金属合金磁石の製造方法。

2. 前記第1項の製造方法において、上記焼結後の冷却速度が10℃/分以下とした製造方法。

3. 前記第1項の製造方法において、上記熱処理の保持時間が5~60分であり、その後の冷却速度を50℃/分以上とした製造方法。

4. 前記第1項の製造方法において、希土類元素-ネオジウム、遷移金属が鉄またはその一部を

きるだけ少ない希土類磁石の開発が急がれている。ネオジウム-鉄合金はSm-Co系合金を凌駕する飽和磁化をもちながらも、磁化容易方向が結晶のC面にあるため、永久磁石に用いることができなかった。しかし、超急冷材料の研究(N.C. Koon 他 Appl. Phys. Lett. 39(4) 1981, 840~842 ページ)希土類元素-遷移金属間化合物の磁性に及ぼす亜金属の効果等の研究にもとづき、ネオジウム-鉄-ホウ素化合物が永久磁石材料として期待できることがわかってきた。ところが、その合金の製造方法は全く分っていない。

#### 〔発明の目的〕

本発明は、ネオジウム-鉄-ホウ素系のように希土類元素-遷移金属-亜金属からなり、なるべくSmやCoの使用量が少なく、しかも、Sm-Co磁石に比して高いエネルギー積を有する磁石材料を再現性良く製造する方法を提供することを目的とする。

#### 〔発明の構成〕

本発明は、希土類元素(R)-遷移金属元素(T)-亜

金属(P)合金粉末の成形体を真空中あるいは不活性ガス雰囲気中にて1050~1150℃の温度で焼結し、その後550~750℃の温度で熱処理することを特徴とする希土類元素-遷移金属元素-亜金属合金磁石の製造方法である。

ここで、焼結温度が1050℃未満では焼結性が悪く、密度が向上せず、Brが向上しない。一方1150℃を越えると、結晶成長してHcが低下してしまう。従って高いエネルギー積 $((BH)_{max})$ を得るには、焼結温度は1050~1150℃の範囲が必要で、この範囲で真空中に近いものが得られる。

なお、焼結に引き続き冷却スピードも磁石特性に影響を及ぼす。この冷却スピードは1分当り10℃以下の比較的ゆっくりとしたスピードが好ましい。

上記熱処理温度は、550℃以下では角形性が悪くなり、また750℃以上では熱処理効果はなくなるので、550~750℃の範囲に選ばれるが、好ましくは600~650℃が良い。

なお、熱処理の保持時間は5~60分で行うの

が良く、5分以下および60分以上では熱処理の効果による磁石特性の向上は見られない。保持時間のさらに好ましいのは15~45分に行うことである。さらに冷却スピードは焼結後の冷却スピードより早い方が好ましく、1分当り50℃以上の割合で冷却することが良く実用的(工業的)には100℃/分以上とすることが良い。但し、100℃/分以上としたときの磁石特性における変動はあまり差はない。一方50℃以下とした時は磁石特性はあまり改善されず、熱処理保持温度の制御幅が極めて小さくなり、それをはずれると熱処理しない時より磁石特性が劣化することとなる。

なお、本発明において、希土類元素RはNd, Pr, La, Ce, Tb, Dy, Ho, Er, Eu, Sm, Gd, Pm, Tm, Yb, Lu の一種又は組み合わせであるが、好ましくはNd, Prが良い。また遷移金属TはFe, Co, Ni の一種で、好ましくはFeの一種又はCoとの組み合わせが良い。又、亜金属Pはホウ素B, シリコンSi, リンP, 炭素C, ゲルマニ

ウムGe, 窒素Nの一種又は組み合わせであるが、好ましくはBが良い。

そして、最終的製品の金属間化合物相は全量の70~90%が $(R_2T_{12})_{1-x}Px$ (但し $x=0.1\sim0.35$ )の磁性相を含むことを意味する。

以下本発明の実施例について詳細に説明する。

#### 実施例1

##### 〔プロセス〕

ネオジウムが33.6wt%, ホウ素が1.05wt%, 鉄が残部となるように、アルゴン雰囲気中で高周波加熱により合金を溶解した。

次に、この合金インゴットを粗粉砕した後、ボールミルを用いて平均粒径約4 $\mu$ mに微粉砕した。この粉末を約10kOeの磁界中150MPaの圧力で成形した。この成形体を真空雰囲気中1060℃で2時間焼結後、0.5~1000℃/分の速度で冷却した。各磁気特性と冷却速度との関係を第1図に示した。各磁気特性は、冷却速度に大きく影響されることが明らかで、冷却速度<sup>が</sup>遅くなるにしたがい磁石特性は上昇し、0.5~10℃/分で最

高値に達した。

上記の1060℃2時間真空焼結後、1℃/分ずつで冷却して得た試料Aをさらに加熱して500～700℃30分間熱処理した。得られた試料の最大エネルギー積と熱処理温度との関係を第2図に示した。また、曲線a, b, cは熱処理後の冷却速度が100℃/分, 50℃/分, 1℃/分のものである。熱処理後の冷却速度に関係なく600～650℃のところにピーク値を持つ。そして冷却速度が100℃/分とした時には550℃～750℃の保持で熱処理すれば $(BH)_{max}$ は処理なしの時より大きく向上していることが分る。

上述の試料Aについて、熱処理の保持時間の検討を進めた。600℃, 5分～1時間熱処理後約100℃/分で急冷した。この試料の最大エネルギー積と熱処理時間との関係を第3図に示す。5～45分の熱処理で高特性が得られることがわかる。また、60分以上となると磁石特性の向上はなくなる。

次に上記した1060℃で2時間焼結後、0.5～

1000℃/分の速度で冷却した全ての試料を600℃で30分間熱処理し、その後冷却速度100℃/分で冷却した。この場合の磁石特性を第4図に示す。第1図及び第4図とを比較すれば、第4図における特性は格段に勝れていることが明らかで、 $(BH)_{max}$ が40 MGOe以上と、これまでのSm-Co磁石では得られなかった磁石特性が安定して得られることが分る。

#### 実施例2

ネオジウム(Nd)が21.31 wt%, ホウ素(B)が1.2 wt%, 残部鉄(Fe)となるように原料を秤量しアルゴン雰囲気下の高周波加熱により溶解して母合金(これを便宜上B合金)を得た。

またNd69.5 wt%, コバルト(Co)が30.5 wt%, 残部Feとして、前記同様に母合金(これをC合金)を得た。

B合金は強磁性合金で、C合金は非磁性合金である。B及びC合金を夫々粉碎装置によって粒径6μmの粒子径に粉碎し、B合金粉末、C合金粉末を得、 $\frac{B}{B+C} = 85$  wt%に両粉末を混ぜ合わせ、

全体の粒子径が3～4μmとなるように混合及び微粉碎した。その後、この粉末を磁場中(10kOeの磁場)で15φ×8mmの内柱を成型し、この成型体を1080℃真空中で2時間焼結保持し、1℃/分の速度で室温まで冷却した。ここで磁石特性を測定した。

次に、上記焼結体をさらに600℃で20分熱処理し、その後の冷却を80℃/分で冷却して、前記同様磁石特性を測定した。

以上の特性結果をまとめたのが第1表である。これによれば、熱処理を施すことが極めて特性の向上に重要であることが明らかである。

第 1 表

	熱処理	密度 g/cc	磁 石 特 性		
			Br(KG)	$iH_c(Oe)$	$(BH)_{max}(MGOe)$
比較例	熱処理なし	7.4	12.0	9.8	35
本実施例	熱処理あり	7.4	13.5	13.0	42

#### 〔発明の効果〕

上記実施例から明らかなように、本発明によればR(希土類元素)-T(遷移金属元素)-P(亜金属元素)系永久磁石を粉末冶金法で得る場合に、焼結後に熱処理を施すことにより従来の希土類コバルト磁石(例えばSmCo<sub>5</sub>, Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>磁石)に比して磁石特性Br, Hc,  $(BH)_{max}$ が大幅向上した磁石を得ることができる。

#### 4.図面の簡単な説明

第1図は、真空焼結後、0.5～1000℃/分の速度で冷却した試料の各磁気特性と冷却速度の関係を示す図である。

第2図は、真空焼結後、1℃/分で冷却した試料の最大エネルギー積と熱処理温度および熱処理後の冷却速度との関係を示す図である。

第3図は、真空焼結後、1℃/分で冷却した試料の最大エネルギー積と熱処理時間の関係を示す図である。

第4図は、真空焼結後、0.5～1000℃/分で

室温まで冷却し、600℃30分熱処理後約100℃/分冷却した試料の各磁気特性と焼結後の冷却速度の関係を示す図である。

代理人 (7127) 非理士 後藤 洋介



